编号：2016-0172

加热基板上硅油液滴蒸发诱发的 Marangoni 对流失稳现象实验研究[1]

贾沂伟 [1]，石万元 [1,2]，王天石 [1]
（1. 重庆大学动力工程学院，重庆 400044
2. 重庆大学低品位能源利用技术及系统教育部重点实验室，重庆 400044）

摘要：实验观察了加热基板上 0.65cSt 硅油液滴蒸发过程 Marangoni 对流失稳现象及其演变规律，测量了 Marangoni 对流失稳的临界条件，分析了润湿半径和 *Ma* 数对液滴内 Marangoni 对流稳定性的影响。结果发现：只有当液滴的接触角减小到某一临界值以下时，液滴内才产生 Bénard-Marangoni 对流涡胞，涡胞呈"花瓣"状，液滴顶点处较尖细，三相接触线附近为圆弧形，涡胞相互挤压处呈直线形。随着蒸发的进行，涡胞变短变粗。涡胞数随润湿半径、*Ma* 数的增大而增多。产生 Bénard-Marangoni 对流涡胞的临界接触角 θ_c 随 *Ma* 数的增大而增大。液滴边缘处始终为热毛细对流，无 Bénard-Marangoni 对流涡胞。

关键词：液滴，蒸发，热毛细对流，Bénard-Marangoni 对流，稳定性
中国分类号：TK123 **文献标识码：**A

Experimental investigation on Marangoni convection instability induced by evaporation in a sessile droplet of silicone oil on a heated substrate

JIA Yi-Wei[1], SHI Wan-Yuan[1, 2], WANG Tian-Shi[1]
(1. College of Power Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China;
2. Key Laboratory of Low-grade Energy Utilization Technologies and Systems, Ministry of Education, Chongqing 400044, China)

Abstract: The phenomenon of Marangoni convection instability in an evaporating sessile droplet of 0.65cSt silicon oil on a heated substrate was observed by experiment. The critical condition for the incipience of the unstable Marangoni convection was measured and the influences of the wetting radius and *Ma* number on the Marangoni convection instability were investigated. The result found that the flower-like Bénard-Marangoni convection cell would occur only if the contact angle was less than a critical value. At the apex of droplet the shape of the Bénard-Marangoni convection cell is sharp and thin but it is circular arc near the contact line. With evaporating, the cells become short and thickness. The cell number of the Bénard-Marangoni convection increases with increase of wetting radius and the *Ma* number. The critical contact angle for the incipience of the Bénard-Marangoni convection increases with increasing the *Ma* number. Near the contact line, thermocapillary convection always exists there but without

[1]**收稿日期：**2016 年
基金项目：国家自然科学基金项目(批准号 51676018)
作者简介：贾沂伟（1991-- ），男，硕士研究生，主要从事传热学、非平衡热力学的科研工作。
通讯作者： 石万元，Tel: 023-65102471，教授，博导，Email: shiwy@cqu.edu.cn）

Bénard-Marangoni convection cell.

Keywords: Droplets, evaporation, thermocapillary convection, Bénard-Marangoni convection, stability

0 引言

液滴蒸发现象在自然界广泛存在，而且它对喷雾冷却、雾化燃烧、喷墨打印、DNA 分子显像等生产实际和研究过程具有十分重要的影响[1]。近年的研究发现，在液滴蒸发的主要阶段，液滴边沿蒸发快而顶部蒸发慢，蒸发速率的不均匀导致液滴表面温度分布不均匀，从而导致液滴表面张力不均匀而在液滴内部诱发 Marangoni 对流[2]。较早地，清华大学的张能力、徐友仁等[3]实验研究了挥发性有机液滴在加热面上的蒸发，发现液滴的内部流动可分为对流区、Bénard 对流区、滞止区、边缘区等区域。任泽霈等[4]通过数值模拟认为当液滴蒸发较快时 Marangoni 对流可能失稳。Deegan 等人[5]认为正是 Marangoni 对流导致了含有固体微粒的液滴在平面上蒸干后形成了咖啡环状沉积。Hu 和 Larson[6]发现当接触角大于 14°时热毛细对流从液滴边沿向顶部流动，而当接触角小于 14°时流动方向则反向。Xu 和 Luo [7]发现液滴表面流动存在一个滞止点，滞止点两侧的流动方向相反。金哲岩和胡晖[8]发现液滴蒸发时内部产生一对漩涡，当接触面温度较低时，漩涡维持的时间较长，随着接触面温度的升高，漩涡逐渐消失。Girard 等人[9]发现当加热半径大于液滴润湿半径时，三相接触线温度高于液滴顶部温度；反之，则低于液滴顶部温度。Ghasemi 和 Ward[10]发现热毛细对流对液滴蒸发时能量传输起着十分重要的作用，特别是三相接触线附近。最近，Sefiane 和 Brutin 等人[11-16]通过红外线热像仪观察了润湿半径小于毛细半径的甲醇、乙醇和 FC-72 液滴在加热平面上蒸发时 Marangoni 对流失稳后产生的热流体波，分析了热流体波的波数随蒸发过程的变化情况。

从现有的研究报道看，目前的研究主要针对易挥发液滴，认为蒸发液滴内 Marangoni 对流失稳现象主要由液滴表面切向温度梯度驱动的热毛细对流引起，属于热流体波。而液滴为弯曲自由面，蒸发过程中总是同时存在沿液滴径向的法向温度梯度和液滴表面的切向温度梯度，两个方向的温度梯度总是互相耦合的。液滴内是否会产生由法向温度梯度引起的 Bénard-Marangoni 对流（以下简称 BM 对流），目前对该问题还缺乏了解。为此，本文以加热板上挥发性较低的液滴蒸发诱发的 Marangoni 对流为研究对象，实验观测 Marangoni 对流的特征，重点关注 BM 对流失稳现象，分析润湿半径及基板温度对它们的影响。

1 实验装置

实验装置示意图如图 1 所示，圆形基板采用紫铜加工而成，基板表面经抛光处理并涂有超疏水涂层，基板固定在有机玻璃圆柱形空腔上，空腔与恒温油浴（PP07R-20-A12Y，PolyScience，控温精度±0.005°C）相连，从而调节基板温度，基板的实际温度通过布置在其上的 4 支 K 型热电偶测量。为保证基板水平，平台底部安装有 3 枚调平螺丝。实验采用铝粉示踪法显示液滴内 Marangoni 对流失稳状态，实验前将少量铝粉（0.1wt%）混入硅油中并搅拌均匀，然后采用微量注射器将数微升的混合液小心地滴落在基板上形成球冠形液滴，通过安装在液滴正上方的显微镜实时观察记录液滴内 Marangoni 对流失稳现象。液滴的接触角采用接触角测量仪（JC2000DM，精度±0.1°）测量，润湿半径通过显微镜观察到的图像测量。工质为 0.65cSt 硅油，其物性参数见表 1。由于所添加铝粉很少，它对硅油物性参数的影响忽略不计。实验中液滴的润湿半径小于毛细长度，浮力的影响可忽略。通过空调控制环境温度，相对湿度采用干湿球温度计测量。

对液滴的接触角，每次实验时测量 4 次取平均值，测量值与平均值的最大偏差为测量误差。实验前对热电偶在 10 ˚C ~50 ˚C 范围内通过与恒温油浴温度对比进行了校验，校验后热电偶的最大误差减小到 0.027%。

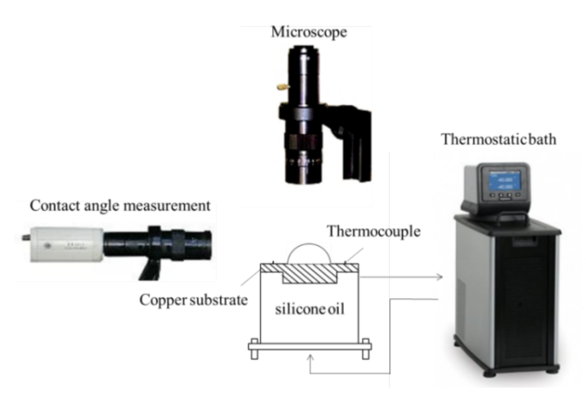


图 1 实验装置示意图

Figure 1 A schematic view of the experimental apparatus

表 1 25℃时 0.65cSt 硅油的物性参数

The properties of 0.65cSt silicone oil when t=25℃

名称	数值
密度 ρ (kg m^{-3})	760
定压比热容 c_p (J kg^{-1}K^{-1})	2000
体积膨胀系数 β (K^{-1})	1.34×10^{-3}
导热系数 λ (W m^{-1}K^{-1})	0.1
动力粘度 μ (kg m^{-1}s^{-1})	4.94×10^{-4}
表面张力温度系数 γ_T (N m^{-1}K^{-1})	8×10^{-5}

2 实验结果与分析

当 Ma=8.146×10^6（$Ma=\gamma_T\Delta Tr/\mu\alpha$, $\Delta T=T_w-T_a$）、环境温度 T_a=295.95K、相对湿度 RH=56%时，对润湿半径 r=2.14mm、初始接触角 θ=41.15°的液滴，基板温度 T_w=298.95K 时其表面的 Marangoni 对流现象如图 2 所示。初始时刻，示踪粒子显示液滴内流体由三相接触线向液滴顶部流动，再由顶部流向液滴底部，流动为对称结构（图 2.a），此时为稳定的热毛细对流，流动尚未失稳。当蒸发进行到 18s 时，液滴内部出现"花瓣"状涡胞(图 2.b)，对每一片"花瓣"，流体由"花瓣"边缘向上流向中心，再由中心向下流入液滴内部，这与 Bénard-Marangoni 对流（以下简称 BM 对流）的特征吻合，此时液滴内产生了 BM 对流涡胞。仔细观察发现，涡胞形态与平液层中的蜂窝状涡胞还有所不同，液滴顶点处涡胞较尖细，靠近三相接触线处为圆弧形，涡胞因挤压相互接触处为直线形。随着蒸发的进行，BM 涡胞数逐渐增多，至 26s（图 2.c）时，液滴表面均匀分布有 13 个涡胞，这些涡胞从液滴顶点延伸至三相接触线附近。但液滴边缘处并没有涡胞，该处仍为热毛细对流。由于蒸发使液滴逐渐变薄，液滴内涡胞的形态逐渐变化，在 32s（图 2.d）时，涡胞变短变粗。至 45s（图 2.f）时，此时液滴已很薄，涡胞与平液层中的蜂窝状涡胞相近，随后涡胞渐渐消失，液滴蒸发完毕。

从图 2（a）、（b）可见，液滴并非一开始就出现 BM 对流涡胞，而是当液滴的接触角减小到某一临界值以下时才会产生 BM 对流。为测定不同 Ma 数下产生 BM 对流的临界接触角，实验中控制液滴体积 V、润湿半径 r 和环境温度 T_a，通过改变基板温度 T_w 来改变 Ma 数，测量蒸发过程中出现 BM 对流的临界接触角 θ_c，结果如图 3 所示。显然，临界接触角 θ_c 随 Ma 数的增大而增大。这是因为，液滴内同时存在法向温度梯度和切向温度梯度，只要存在切向温度梯度，就会产生热毛细对流，热毛细对流将热量从三相接触线处传递到液滴顶点，使法向温差减小，具有削弱 BM 对流的作用，对 BM 对流的产生具有抑制作用。当接触角较小时，液滴较为扁平，形状接近于平液层，切向温度梯度较小，特别是液滴顶点附近，热毛细对流相对较弱，BM 对流较容易产生，所以，在 Ma 数一定的情况下，只有当接触角减小到一定值，BM 对流才会产生。随着 Ma 数的增大，法向温度梯度增大，有利于 BM 对流的形成，使得 BM 对流在与热毛细对流的"竞争"中更加占优，即便在更高的接触角下也能产生 BM 对流，因而临界接触角增大。

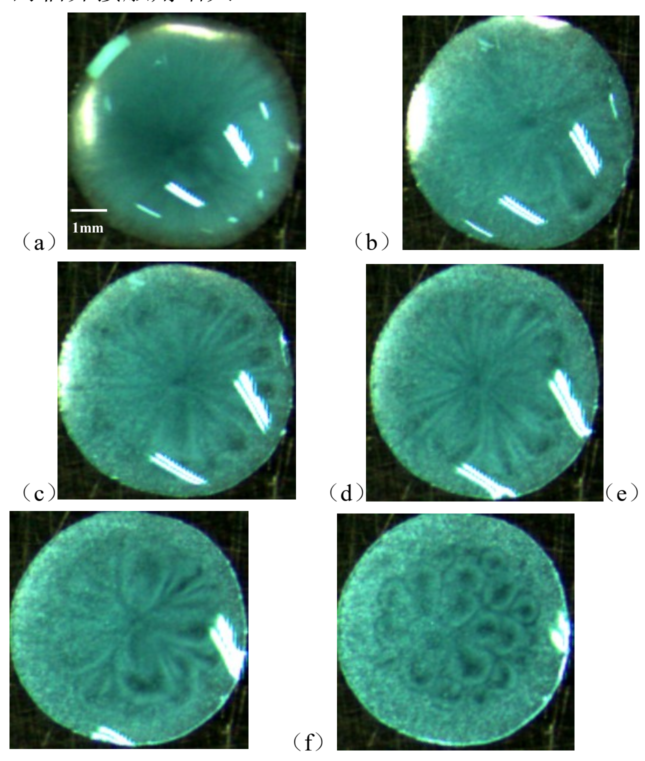


图 2 液滴内 Bénard-Marangoni 对流的演变过程

Figure 2 The evolution of Bénard - Marangoni convection in droplet

(a) The thermal capillary convection when t=0s and the contact angle θ=44.52°; (b) BM cells appear when t=18s and θ=31.66°; (c) the flower-like Bénard-Marangoni convection cells occur when t=26s and θ=25.94°; (d) the cells becomes shorter and thicker when t=32s and θ=20.07°; (e) the cells are further shortened when t= 39s and θ=15.35°; (f) the honeycomb-like cells appear when t=45s and θ=12.11°

（a）t=0s 时刻的热毛细对流，接触角 θ=44.52°；（b）t=18s 时出现 BM 涡胞，θ=31.66°；（c）t=26s 时涡胞呈"花瓣"状，θ=25.94°；（d）t=32s 时涡胞变短变粗，θ=20.07°；（e）t= 39s 时涡胞进一步变短，θ=15.35°；（f）t=45s 时的蜂窝状涡胞，

θ=12.11°

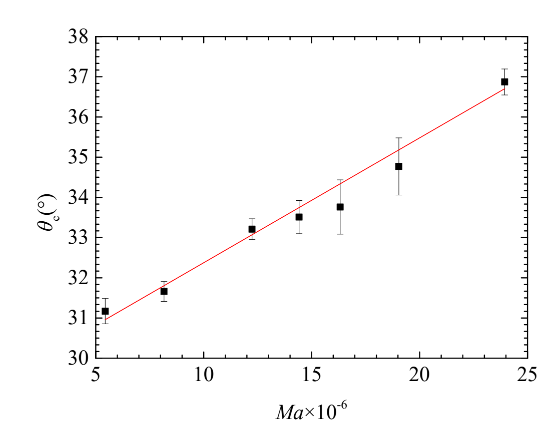


图 3 BM 对流失稳的临界接触角与 Ma 数的关系曲线

Figure 3 The relation curve of the critical contact angle and Ma number of BM convective instability

对于润湿半径不同的液滴，在蒸发过程中涡胞形态没有明显的区别，但最大涡胞数并不相同，在 T_w=303.15K、T_a=295.15K、RH=60％的情况下，r=1.81mm 时液滴在蒸发过程中的最大涡胞数为 19 个（图 4.a），r=2.73mm 时的最大涡胞数为 23 个（图 4.b），r=3.23mm 时的最大涡胞数为 26 个（图 4.c）。显然，相同情况下，润湿半径大的液滴的最大涡胞数也较大。这是因为润湿半径越大，液滴的容纳能力越大，涡胞数也就越多。

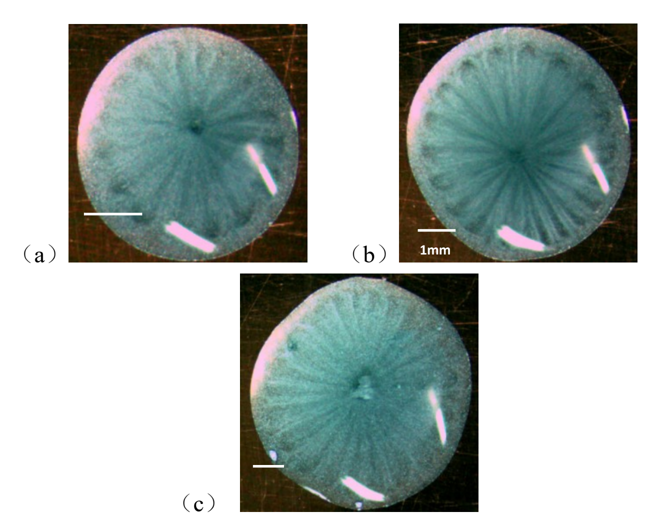


图 4 液滴在 T_w=304.75K、T_a=295.95K、RH=60％情况下（a）r=1.81mm 时最大涡胞数为 19，（b）r=2.73mm 时最大涡胞数为 23，（c）r=3.23mm 时最大涡胞数为 26

Figure 4 The droplet in the cases of T_w = 304.75K, T_a = 295.95K, RH = 60% (a) The maximum number of cells is 19 when r=1.81mm, (b) The maximum number of cells is 23 when r=2.73mm, (c) The maximum number of cells is 26 when r=3.23mm

润湿半径一定时，不同 Ma 下的最大涡胞数 n 也不相同，如图 5 所示，最大涡胞数随 Ma 数的增大而增大。当 Ma 数增大，液滴内部的法向温度梯度增大，有利于 BM 对流的产生，因此涡胞数增多。

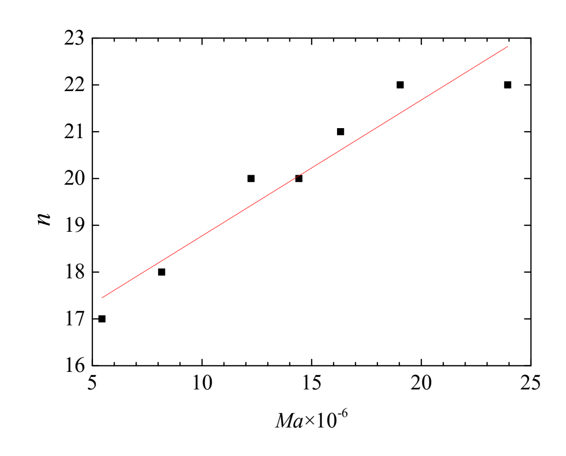


图 5 液滴内最大涡胞数 n 随 Ma 数的变化曲线

Figure 5 The maximum number of cells n changes with the Ma number in droplet

3 结论

通过对加热基板上 0.65cSt 硅油液滴内 Marangoni 对流失稳现象的研究，实验观察了蒸发液滴内 Bénard-Marangoni 对流涡胞及其演变规律，测量了其失稳条件，研究了液滴的润湿半径和 Ma 数对液滴内 Marangoni 对流稳定性的影响，得到以下结论：

（1）只有当液滴的接触角减小到某一临界值以下时，液滴内才会产生 Bénard-Marangoni 涡胞，涡胞呈“花瓣”状，形态与平液层中的蜂窝状涡胞有所不同，液滴顶点处涡胞较尖细，靠近三相接触线处为圆弧形，涡胞相互挤压处为直线形。随着蒸发的进行，涡胞变短变粗。液滴边缘始终没有涡胞，为热毛细对流。

（2）产生 Bénard-Marangoni 涡胞的临界接触角 θ_c 随 Ma 数的增大而增大。相同情况下，润湿半径大的液滴内涡胞数越多。这是因为润湿半径越大，液滴的容纳能力更大，涡胞数就越多。涡胞数还随 Ma 数的增大而增大。

参考文献

[1] Cazabat A-M, Guena G. Evaporation of macroscopic sessile droplets [J]. Soft Matter, 2010, 6: 2591-2612.

[2] Singh M, Haverinen H M, et al. Inkjet-printing—process and its applications [J]. Adv. Mater. , 2010, 22: 673-685.

[3] 张能力，徐友仁. 水平面上蒸发滴内的流动微结构及Bénard 细胞流[J]. 工程热物理学报，1985，6: 361-365. Zhang Nengli, Xu Youren. Microstructure of flow and Benard cells in evaporating drops on horizontal plate [J]. Journal of Engineering Thermophysics, 1985, 6: 361-365.

[4] 任泽霈，张能力，罗锐. 平板上蒸发液滴内表面张力作用下流动的研究[J]. 工程热物理学报，1987，8: 370-373. Ren Zepei, Zhang Nengli, Luo Rui. Flows driven by surface tension in droplet on a plate [J]. Journal of Engineering Thermophysics, 1987, 8: 370-373

[5] Deegan R D, Bakajin O, et al. Capillary flow as the cause of ring stains from dried liquid drops [J]. Nature, 1997, 389: 827-829.

[6] Hu H, Larson R G. Analysis of the microfluid flow in an evaporating sessile droplet [J]. Langmuir, 2005, 21: 3963-3971.

[7] Xu X, Luo J. Marangoni flow in an evaporating water droplet [J]. Appl. Phys. Lett. , 2007,91: 124102-1-3.

[8] 金哲岩，胡晖. 接触面温度对表面液滴蒸发过程的影响[J]. 同济大学学报，2012，40：495-498. Jin Zheyan, Hu Hui. Effect of surface temperature on droplet evaporation [J]. Journal of Tongji University, 2012，40：495-498.

[9] Girard F, Antoni M. Influence of substrate heating on the evaporation dynamics of pinned water droplets [J]. Langmuir, 2008, 24: 11342-11345.

[10] Ghasemi H, Ward C A. Energy transport by thermocapillary convection during sessile-water-droplet evaporation [J]. Physical Review Letters, 2010, 105: 136102-1-4.

[11] Sefiane K, Moffat J R, et al. Self-excited hydrothermal waves in evaporating sessile drops [J]. Applied Physics Letters, 2008, 93: 074103-1-3.

[12] Sefiane K, Steinchen A, Moffat R. On hydrothermal waves observed during evaporation of sessile droplets [J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2010, 365: 95-108.

[13] Karapetsas G, Matar O K, Valluri P, Sefiane K. Convective rolls and hydrothermal waves in evaporating sessile drops [J]. Langmuir, 2012, 28: 11433-11439.

[14] Carle F, Sobac B, Brutin D. Hydrothermal waves on ethanol droplets evaporating under terrestrial and reduced gravity levels [J]. J. Fluid Mechanics, 2012, 712: 614-623.

[15] Sobac B, Brutin D. Thermocapillary instabilities in an evaporating drop deposited onto a heated substrate [J]. Physics of Fluids, 2012, 24: 032103-1-16.

[16] Brutin D, Sobac B, et al. Infrared visualization of thermal motion inside a sessile drop deposited onto a heated surface [J]. Experimental Thermal and Fluid Science, 2011, 35: 521-530.

附页

作者简介：贾沂伟（199101），男，硕士研究生，主要从事传热学、非平衡热力学的科研工作，地址，重庆市沙坪坝区沙正街 174 号重庆大学 A 区动力工程学院，邮编，400044，联系方式，15215176095，646947079@qq.com。

通讯作者：石万元，男，重庆大学动力工程学院教授、博士生导师，主要从事传热学、非平衡热力学的教学和科研工作，地址，重庆市沙坪坝区沙正街 174 号重庆大学 A 区动力工程学院，邮编，400044 联系方式，13983719902，shiwy@cqu.edu.cn。